



HAL
open science

Sur la relaxation d'une charge d'espace

Rui Coelho

► **To cite this version:**

Rui Coelho. Sur la relaxation d'une charge d'espace. Revue de Physique Appliquée, Société française de physique / EDP, 1983, 18 (3), pp.137-146. 10.1051/rphysap:01983001803013700 . jpa-00245078

HAL Id: jpa-00245078

<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00245078>

Submitted on 1 Jan 1983

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
 Physics Abstracts
 77.20 — 77.40

Sur la relaxation d'une charge d'espace

R. Coelho

Laboratoire de Physique des Décharges (*), Ecole Supérieure d'Electricité, Plateau du Moulon, 91190 Gif-sur-Yvette, France

(Reçu le 19 avril 1982, révisé le 15 novembre, accepté le 24 novembre 1982)

Résumé. — Après avoir rappelé l'origine de la relation de Debye pour la relaxation dipolaire, on présente d'une façon didactique le calcul de la capacitance complexe de charges d'espace constituées de porteurs libres pouvant se déplacer entre électrodes plus ou moins bloquantes. On discute alors l'analogie formelle existant entre la relaxation d'un ensemble de dipôles permanents et celle d'une charge d'espace, et on propose des vérifications expérimentales du modèle.

Abstract. — After recalling the background of Debye's relation for dipolar relaxation, we give an educational presentation for the derivation of the complex capacitance of space charges made of free carriers able to move between more or less blocking electrodes. We then discuss the formal analogy between the relaxation of a collection of permanent dipoles and that of a space charge, and we propose experimental tests of the model.

Liste des symboles utilisés (par ordre d'utilisation).		τ	temps de relaxation
F	force	L	longueur de Debye ($L = \sqrt{D\tau}$)
v	vitesse	X	abscisse réduite. $X = (Z/L) x$
f	coefficient de frottement (équation (1))	Y	$Y = X(d) = (Z/L) d$
P	polarisation	δ	d/L
ω	pulsation du champ appliqué	y^*	permittivité complexe réduite (équation (40))
Γ	facteur de dépolarisation	γ	facteur de transparence d'une électrode
α	exposant		
x	abscisse courante dans l'échantillon, comptée à partir du plan médian		
d	demi-épaisseur de l'échantillon		
p	moment dipolaire		
V	tension (cf. équation (17))		
k	constante de Boltzmann		
T	température absolue		
e	charge électronique		
t	temps		
n	concentration de porteurs		
E	champ électrique		
ε	$ E $		
μ	mobilité de porteurs		
v	incrément de concentration de porteurs		
ε^*	permittivité complexe ($\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$)		
j	densité de courant (exprimée en nombre d'électrons par seconde et par unité de surface)		
D	constante de diffusion		
σ	conductivité		

1. La relaxation dipolaire toute simple. — La relaxation dipolaire au sens de Debye est un processus purement visqueux sans forces de rappel élastiques, donc du premier ordre.

Une équation typique pour un tel phénomène est, par exemple, celle qui décrit la vitesse v d'une particule de masse m après l'application d'une force constante F dans un milieu visqueux exerçant sur la particule en mouvement une force de frottement fv :

$$m \frac{dv}{dt} = F - fv. \tag{1}$$

Si la particule, possédant une charge q , est dans un champ E , la force F est alors qE .

La relation (1) peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{dv}{dt} = \frac{v_s - v}{\tau} \tag{2}$$

où $\tau = m/f$ et v_s est la vitesse limite (statique) $v_s = F/f$ prise par la particule.

(*) ER 114 du CNRS.

Par analogie, on peut écrire pour la polarisation par orientation P_{or} d'un ensemble de dipôles en équilibre thermique :

$$\frac{dP_{or}}{dt} = \frac{1}{\tau} [P_s - P_i - P_{or}(t)]. \quad (3)$$

Ici, τ désigne le temps de relaxation dipolaire, P_s est la valeur finale (statique) de la polarisation dans un champ continu et P_i la valeur initiale qui correspond à la polarisation quasi-instantanée due aux électrons liés et aux ions ($P_{or} \rightarrow P_s - P_i$ dans un champ constant).

Imaginons maintenant que les particules (ou, par analogie, les dipôles) sont dans un champ alternatif de la forme :

$$E = E_0 e^{i\omega t}. \quad (4)$$

En régime alternatif, toutes les variables, et en particulier la polarisation par orientation P_{or} , oscillent sinusoidalement à la pulsation ω , si bien qu'on peut écrire :

$$P_{or}(t) = |P_{or}| e^{i\omega t} \quad (5)$$

et on peut obtenir directement (sinon rigoureusement) la formule de Debye en remplaçant dans (3) dP_{or}/dt par sa valeur $i\omega P_{or}$ tirée de (5) :

$$i\omega P_{or} = P_s - P_i - P_{or}. \quad (6)$$

On en tire :

$$P_{or}(\omega) = \frac{P_s - P_i}{1 + i\omega\tau} \quad (7)$$

de sorte que la polarisation totale $P(\omega)$, somme de la polarisation instantanée P_i et de la polarisation d'orientation P_{or} , s'écrit :

$$P(\omega) = P_i + \frac{P_s - P_i}{1 + i\omega\tau}. \quad (8)$$

En admettant que le champ localement « vu » par les dipôles est égal au champ appliqué, on a, par définition des permittivités :

$$P^*(\omega) = (\varepsilon^* - \varepsilon_0) E \quad (9)$$

$$P_i(\omega) = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_0) E \quad (10)$$

$$\text{et : } P_s(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_0) E \quad (11)$$

de sorte que la relation (8) devient :

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau}. \quad (12)$$

La relation (12) est la fameuse formule de Debye. Notons en passant que, si l'on tient compte du fait que le champ local excède le champ appliqué de la quantité ΓP , où Γ est le facteur de dépolarisation, on

obtient également une relation du type Debye, mais dans laquelle le temps de relaxation τ est changé en :

$$\tau' = \frac{\varepsilon_s + 2/(3\Gamma)}{\varepsilon_\infty + 2/(3\Gamma)} \tau.$$

Dans le plan ($\varepsilon' \varepsilon''$), le diagramme représentatif de la permittivité complexe donnée par (12), est un demi-cercle de diamètre $(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)$; dans le cas où pE est petit devant kT (approximation de Langevin), on a :

$$\varepsilon_s - \varepsilon_\infty = \frac{np^2}{3kT}. \quad (13)$$

Le diagramme observé expérimentalement s'écartant souvent d'un demi-cercle pour se rapprocher d'une demi-voiture aplatie dans la zone des hautes fréquences, Davidson et Cole [1] ont proposé d'exprimer ε^* par une relation empirique dérivée de celle de Debye, mais où le dénominateur $(1 + i\omega\tau)$ est remplacé par $(1 + i\omega\tau)^\alpha$, avec $0 < \alpha < 1$. Aux basses fréquences ($\omega\tau \ll 1$), la relation de Davidson et Cole peut se mettre sous la forme approchée :

$$\varepsilon_{bf}^* \simeq \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\alpha\tau},$$

voisine de la relation de Debye, mais où τ est remplacé par $\alpha\tau$.

Dans la suite de cet article, nous allons tenter de voir dans quelle mesure la relaxation d'une charge d'espace peut être assimilée à une relaxation dipolaire de type Debye, éventuellement modifiée.

2. Introduction à la polarisation par charge d'espace.

— Dans les traitements classiques de la polarisation interfaciale du type Maxwell-Wagner, on admet que le mouvement des charges mobiles dans le matériau n'affecte pas la répartition uniforme du champ. En fait, les charges s'accumulent aux électrodes, dans lesquelles elles se déchargent plus ou moins facilement. Il en résulte des gradients de concentration qui tendent à s'opposer à l'accumulation.

Dans le modèle simple exposé ci-dessous, traité initialement par Mac Donald [2], on fait les hypothèses suivantes :

1. Le matériau contient des centres fixes totalement ionisés (par exemple, des niveaux d'impuretés très voisins de la bande de conduction) et, en concentration égale, des électrons libres de mobilité μ .

2. Les électrodes sont totalement bloquantes de sorte que le courant d'électrons à l'aplomb des électrodes ($x = \pm d$) est nul.

En l'absence de champ appliqué, les électrons libres, uniformément distribués dans l'échantillon, compensent partout la charge des centres ionisés positifs, de sorte que l'échantillon est partout neutre.

En présence d'un champ continu appliqué, les

électrons se répartissent dans l'échantillon sous l'action combinée du champ et de la diffusion qui tend à s'opposer à leur accumulation aux électrodes.

Si $\rho(x)$ désigne la densité de charge à l'équilibre à la profondeur x dans l'échantillon, la polarisation moyenne s'écrit :

$$P = \frac{1}{2d} \int_{-d}^d x\rho(x) dx. \quad (14)$$

Si on inverse alors la direction du champ appliqué, les électrons se répartissent à nouveau et la situation évolue vers un nouvel équilibre où $\rho'(x) = -\rho(x)$, de sorte que le nouveau dipôle macroscopique et la nouvelle polarisation sont opposés au précédent.

On assiste donc à un phénomène semblable à une relaxation dipolaire de type Debye, se produisant dans un échantillon qui — initialement homogène (statistiquement) — devient hétérogène sous l'action du champ. Ceci est représenté sur la figure 1.

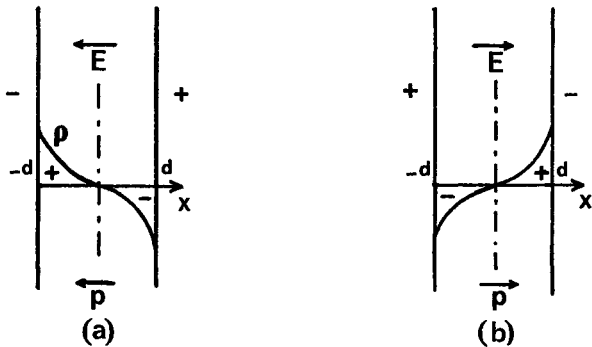


Fig. 1. — Retournement du dipôle macroscopique par inversion du champ appliqué.

[Switching of the macroscopic dipole by reversal of the applied field.]

3. Calcul de la polarisation en alternatif. — Dans ce qui suit, nous allons étudier l'équilibre dynamique du système lorsque l'échantillon est soumis à un champ alternatif de pulsation ω et d'amplitude assez faible pour que le système reste linéaire, et par suite que les variables temps et espace soient séparables. En fait, il s'agit davantage d'une limite sur la tension appliquée ($V \leq kT/e \sim 0,025$ V à température ordinaire) que sur le champ.

Soit ϵ la permittivité de la matrice, c'est-à-dire celle du matériau dans lequel les centres ne seraient pas ionisés. C'est la limite vers laquelle tend la permittivité lorsque la fréquence de mesure tend vers l'infini puisque l'amplitude des oscillations des porteurs tend alors vers 0.

Soit n_0 la concentration uniforme d'électrons libres (et de centres) en l'absence de champ, et μ leur mobilité. En vertu des hypothèses, le nombre total d'électrons par unité de surface de l'échantillon d'épaisseur $2d$ reste égal à $2d.n_0$ en présence du champ.

Soit :

$$E_a = \epsilon_a e^{i\omega t}, \quad (15)$$

le champ appliqué, dont l'amplitude ϵ_a est par hypothèse inférieure à $kT/2ed$.

La concentration de charge à l'abscisse x est peu différente de n_0 , de sorte que la différence $(n - n_0)$ oscille à la pulsation ω et qu'on peut écrire :

$$n(x, t) = n_0 + v(x) e^{i\omega t}. \quad (16)$$

De la même façon, le potentiel $V(x, t)$ et le champ $E(x, t)$ prennent les formes respectives :

$$V(x, t) = \varphi(x) e^{i\omega t}, \quad (17)$$

et :

$$E(x, t) = \xi(x) e^{i\omega t}. \quad (18)$$

Bien entendu, les facteurs $v(x)$, $\varphi(x)$ et $\xi(x)$ sont des quantités complexes, à cause des déphasages.

La permittivité complexe $\epsilon^*(\omega)$ de l'échantillon est par définition :

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon + \frac{P(\omega)}{\epsilon_a} \quad (19)$$

où la polarisation P , définie par (14), résulte de l'excès de densité $v(x)$, donné par (16).

Calcul de $v(x)$. — Le courant de particules à l'abscisse x et à l'instant t est le nombre de charges traversant, par unité de temps, l'unité de surface du plan d'abscisse x . C'est la somme du courant de conduction $\mu n E$ et du courant de diffusion $-D \nabla n$:

$$j(x, t) = -\mu n \frac{\partial V}{\partial x} - D \frac{\partial n}{\partial x}, \quad (20)$$

de sorte que l'équation de conservation :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{\partial j}{\partial x},$$

devient :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \mu \frac{\partial}{\partial x} \left(n \frac{\partial V}{\partial x} \right) + D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2}. \quad (21)$$

En introduisant dans (21) les valeurs de n et V , données en (16) et (17) respectivement, on obtient :

$$i\omega v = \mu n_0 \frac{d^2 \varphi}{dx^2} + D \frac{d^2 v}{dx^2} + \mu \frac{d}{dx} \left(v \frac{d\varphi}{dx} \right) e^{i\omega t}. \quad (22)$$

Puisque v est petit par rapport à n_0 , le 3^e terme du membre de droite de (22) est négligeable par rapport aux deux premiers. Par ailleurs, l'équation de Poisson s'écrit ici :

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} = -\frac{e}{\epsilon} v, \quad (23)$$

et, en combinant (23) à l'équation (22) simplifiée, on obtient :

$$\left(i\omega + \frac{\mu en_0}{\varepsilon}\right)v = D \frac{d^2v}{dx^2}, \quad (24)$$

mais comme $\mu en_0/\varepsilon = \sigma/\varepsilon$ est l'inverse du temps de relaxation τ du matériau, (24) s'écrit sous la forme :

$$\frac{d^2v}{dx^2} = \frac{1 + i\omega\tau}{D\tau} v \quad (25)$$

soit, en utilisant la variable complexe réduite :

$$X = \sqrt{\frac{1 + i\omega\tau}{D\tau}} x = \frac{Z}{L} x$$

où $Z = \sqrt{1 + i\omega\tau}$ et $L = \sqrt{D\tau}$ est la longueur de Debye,

$$\frac{d^2v}{dX^2} = v. \quad (26)$$

Cette équation a pour solution générale :

$$v = v_1 e^X + v_2 e^{-X},$$

mais la conservation des charges mobiles implique :

$$\int_{-d}^d v(x) dx = 0,$$

soit $v_2 = -v_1$, de sorte que la solution physiquement acceptable pour $v(x)$ est :

$$v(x) = 2 v_1 \sinh\left(\frac{Z}{L} x\right) = 2 v_1 \sinh X. \quad (27)$$

Par intégration, on obtient :

$$\varepsilon(x) = \frac{2 e v_1 L}{\varepsilon Z} \cosh X + \varepsilon_0, \quad (28)$$

et la constante ε_0 résulte de la condition aux limites imposée par le potentiel appliqué :

$$\int_{-d}^d \varepsilon(x) dx = 2 \varepsilon_a d,$$

qui s'écrit :

$$\frac{2 e v_1}{\varepsilon} \left(\frac{L}{Z}\right)^2 \sinh Y + \varepsilon_0 d = \varepsilon_a d, \quad (29)$$

où l'on a posé :

$$\begin{aligned} Y = X(d) &= (d/L) Z = \\ &= \frac{\delta}{\sqrt{2}} [(\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2} + 1)^{1/2} + i(\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2} - 1)^{1/2}], \end{aligned}$$

de sorte que (28) prend la forme :

$$\varepsilon(X) = \varepsilon_a + \frac{2 e d v_1}{\varepsilon Y} \left(\cosh X - \frac{\sinh Y}{Y} \right). \quad (30)$$

Finalement, v_1 peut être obtenu en écrivant que le courant de particules en $x = d$ ($X = Y$) est nul, puisque les électrodes sont bloquantes :

$$n\mu\varepsilon(Y) - D \frac{Z}{L} \left(\frac{dv}{dX} \right)_Y = 0. \quad (31)$$

Compte tenu de (27) et (30), (31) s'écrit :

$$\varepsilon_a + \frac{2 e d v_1}{\varepsilon Y} \left(\cosh Y - \frac{\sinh Y}{Y} \right) = \frac{2 D Z v_1}{n\mu L} \cosh Y. \quad (32)$$

En se souvenant que $n \approx n_0$ et en utilisant les relations écrites ci-dessus entre L , D , μ et n , (32) prend la forme :

$$\varepsilon_a = \frac{2 v_1 e}{\varepsilon} \left[(LZ - L/Z) \cosh Y + \frac{L}{Z} \frac{\sinh Y}{Y} \right] \quad (33)$$

et comme $LZ - L/Z = i\omega\tau L/Z$, la relation ci-dessus donne v_1 , et par suite :

$$v(x) = 2 v_1 \sinh X = \frac{\varepsilon Z \varepsilon_a}{eL} \frac{\sinh X}{i\omega\tau \cosh Y + \sinh Y/Y}. \quad (34)$$

Par suite, la polarisation donnée par (14) devient :

$$P(\omega) = \frac{\varepsilon \varepsilon_a}{Y} \frac{\int_0^Y X \cosh X dX}{i\omega\tau \cosh Y + \sinh Y/Y}, \quad (35)$$

soit, après intégration du numérateur :

$$P(\omega) = \varepsilon \varepsilon_a \frac{\cosh Y - \sinh Y/Y}{i\omega\tau \cosh Y + \sinh Y/Y}. \quad (36)$$

En revenant à la définition de P (19), on a finalement :

$$\varepsilon^* = \varepsilon \frac{1 + i\omega\tau}{i\omega\tau + \tanh Y/Y}. \quad (37)$$

La relation (37) a été étendue par Meaudre et Mesnard [3-4] au cas où l'on tient compte de l'existence de pièges dans le matériau, ce qui modifie Y .

4. Discussion. — Nous allons maintenant étudier la fonction de ω définie par (37), en essayant de voir dans quelle mesure elle s'apparente à une relaxation dipolaire de Debye, ce qui constitue l'une des originalités essentielles de ce travail. Si l'on forme la

permittivité réduite :

$$y^* = \frac{\varepsilon^* - \varepsilon_\infty}{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}, \quad (38)$$

où $\varepsilon_s = \varepsilon(0)$ et $\varepsilon_\infty = \varepsilon(\infty)$, on a, en utilisant (3) :

$$y^* = \frac{\operatorname{tgh} \delta / \delta}{1 - \operatorname{tgh} \delta / \delta} \frac{1 - \operatorname{tgh} Y / Y}{i\omega\tau + \operatorname{tgh} Y / Y}. \quad (39)$$

A la température ambiante, le nombre δ vaut $\delta = d\sqrt{40 n_0 e}$, et pour des valeurs typiques de n_0 et d , δ est en général nettement inférieur à l'unité. On peut alors développer $\operatorname{tgh} \delta / \delta$ en fonction des puissances croissantes de δ :

$$\operatorname{tgh} \delta / \delta = 1 - \delta^2/3 + 2\delta^4/15 + \dots, \quad (40)$$

de sorte que :

$$\varepsilon^*(0) = \varepsilon_s = \varepsilon(1 + \delta^2/3 + \dots). \quad (41)$$

Examinons en détail les deux extrémités du diagramme de permittivité complexe.

4.1 $\omega\tau \sim 0$. — On a dans ce cas :

$$Z = \sqrt{1 + i\omega\tau} \simeq 1 + i\omega\tau/2 \quad (42)$$

donc :

$$Y \simeq \delta(1 + i\omega\tau/2). \quad (43)$$

Pour trouver $\operatorname{tgh} Y$, on peut développer la fonction tgh au voisinage de δ par la formule de Mac Laurin :

$$\operatorname{tgh} Y \simeq \operatorname{tgh} \delta + (i\omega\tau\delta/2)(1 - \operatorname{tgh}^2 \delta) \dots, \quad (44)$$

de sorte que :

$$\begin{aligned} \frac{\operatorname{tgh} Y}{Y} &\simeq \frac{\operatorname{tgh} \delta + i\omega\tau\delta(1 - \operatorname{tgh}^2 \delta)/2}{\delta(1 + i\omega\tau/2)} \simeq \\ &\simeq \frac{\operatorname{tgh} \delta}{\delta} \left[1 + \frac{i\omega\tau}{2} (\delta \operatorname{cotgh} \delta - \delta \operatorname{tgh} \delta - 1) \right]. \end{aligned} \quad (45)$$

Ainsi, y^* donné par la relation (39) peut être mis sous la forme d'une relation de Debye :

$$y^* \simeq \frac{1}{1 + i\omega\tau'} \quad (46)$$

où l'on a posé :

$$\tau' = \frac{1}{2} \left(3\delta \operatorname{cotgh} \delta - \frac{\delta^2}{\delta \operatorname{cotgh} \delta - 1} \right) \tau. \quad (47)$$

On a ainsi démontré que le diagramme de y^* aux basses fréquences est très voisin du demi-cercle de Cole et Cole de diamètre 01, quel que soit δ .

Si δ est petit devant l'unité (cas usuel), le rapport τ'/τ est une forme indéterminée; mais en utilisant le développement de $\delta \operatorname{cotgh} \delta$ au quatrième ordre ($\delta \operatorname{cotgh} \delta = 1 + \delta^2/3 - \delta^4/45 \dots$), on montre que ce

rapport vaut $2\delta^2/5$, de sorte que ε^* prend la forme :

$$\varepsilon^* \sim \varepsilon \left(1 + \frac{\delta^2/3}{1 + 2i\omega\tau\delta^2/5} \right). \quad (48)$$

Au contraire, pour les matériaux intrinsèques, par exemple les cristaux ioniques, ayant une très grande concentration de porteurs très mobiles, la longueur de Debye peut être inférieure aux dimensions atomiques, de sorte que $\delta = d/L \gg 1$, et

$$\varepsilon^* \sim \varepsilon \left(1 + \frac{\delta}{1 + i\omega\tau\delta} \right). \quad (49)$$

4.2 $\omega\tau \rightarrow \infty$. — Dans ce cas, $Y^2 \sim i\omega\tau\delta^2$, de sorte que :

$$Y \simeq (1 + i)\delta\sqrt{\omega\tau/2}$$

et :

$$\frac{\operatorname{tgh} Y}{Y} \simeq \frac{1 - i}{\delta\sqrt{2\omega\tau}}.$$

On peut alors mettre y^* sous la forme :

$$y^* \simeq 6(\delta\sqrt{2\omega\tau})^{-3} (1 - i\delta\sqrt{2\omega\tau}). \quad (50)$$

On en déduit que le diagramme de permittivité complexe est osculateur à la courbe d'équation $y = (6x^2)^{1/3}$. Le diagramme y^* est situé au-dessous du demi-cercle de Cole et Cole; toutefois, l'écart entre le diagramme et le demi-cercle n'est notable qu'à haute fréquence, et encore, exclusivement pour les faibles du paramètre δ .

Ceci est précisé sur les figures 2 a, b, c et d, obtenues par ordinateur. Les parties réelle et imaginaire de $\varepsilon^*(\omega)$ sont représentées en fonction de $f = \omega\tau$ respectivement sur les figures 3a et 3b.

Remarque sur les valeurs numériques. — Tout comme dans le cas de la relaxation dipolaire Debye, on peut dire que la fréquence est basse ou élevée selon que le produit $\omega\tau'$ est respectivement inférieur ou supérieur à l'unité. Ainsi, pour les faibles valeurs de δ qui entraînent $\tau' = 2\delta^2\tau/5$, la fréquence critique f_c du maximum de dissipation est de l'ordre de :

$$f_c = \frac{5}{4\pi\delta^2\tau} = \frac{5D}{4\pi d^2}.$$

En utilisant la formule d'Einstein pour exprimer D en fonction de μ , f_c à la température ambiante a pour valeur $\mu/32\pi d^2$. On peut alors dresser le tableau ci-dessous, pour $d = 100 \mu\text{m}$ et $d = 1 \mu\text{m}$,

	Isolant		Semiconducteur	
μ ($\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$)	10^{-12}		10^{-4}	
Epaisseur d (μm)	100	1	100	1
$f_c = \mu/32\pi d^2$ (s^{-1})	10^{-6}	10^{-2}	10^2	10^6

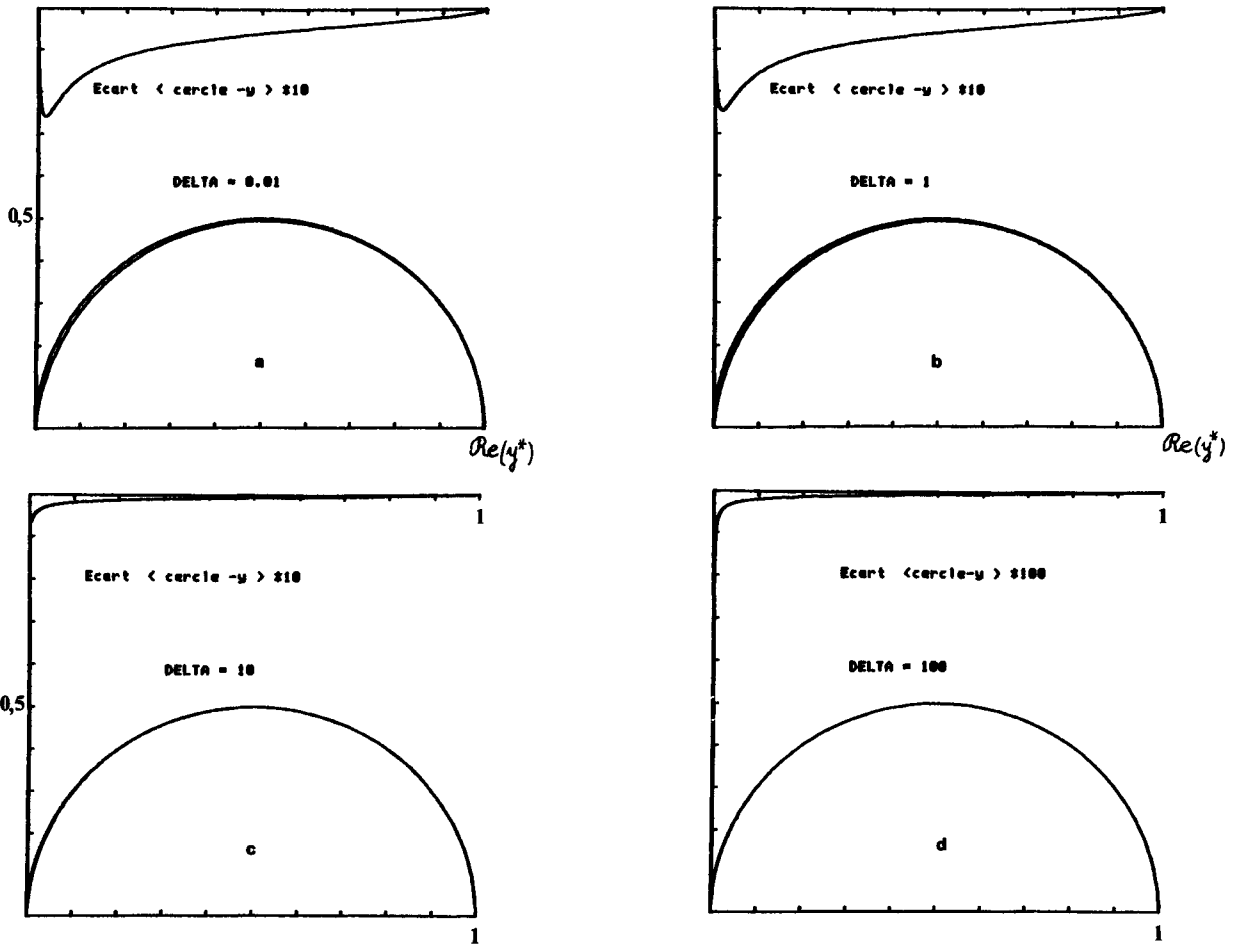
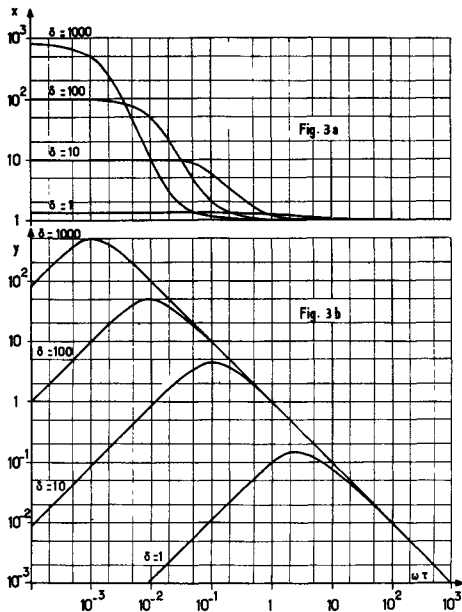


Fig. 2. — Diagrammes de la permittivité complexe réduite donnée par la relation (39), pour différentes valeurs de δ . Les écarts entre les demi-cercles correspondant à la relation de Debye et les diagrammes, amplifiés d'un facteur 10 ou 100, sont portés au-dessus des diagrammes.

[Diagrams of the reduced complex permittivity given by equation (39), for various values of δ . The distances between the diagrams and the semi-circles for the Debye relation, expanded by a factor 10 or 100, are drawn above the diagrams.]



et l'on voit que la fréquence critique peut atteindre, dans le cas de semiconducteurs en couche mince, des valeurs comparables aux fréquences de relaxation dipolaire.

Dans le cas où $\delta \gg 1$, la fréquence critique

$$f_c = \frac{1}{2\pi\delta\tau} = \frac{\mu}{2\pi d} \left(\frac{nkT}{\epsilon} \right)^{1/2}$$

peut être très supérieure (par un facteur 10^6 pour les matériaux intrinsèques) aux valeurs calculées dans le tableau ci-dessus.

Fig. 3. — Parties réelle ϵ' (3a) et imaginaire ϵ'' (3b) de ϵ^* donné par la relation (37), en fonction de $\omega\tau$, pour différentes valeurs de δ .

[Real (3a) and imaginary (3b) parts of ϵ^* given by (37), as a function of $\omega\tau$, for various values of δ .]

5. Répartition du champ. — Il résulte des relations (31) et (33) que :

$$\varepsilon(X) = \frac{i\omega\tau \cosh Y + \cosh X}{i\omega\tau \cosh Y + \sinh Y/Y} \varepsilon_a \quad (51)$$

On a tracé sur les figures 4a et 4b le module de $\varepsilon(X)$ pour différentes valeurs de δ et $\omega\tau$. On voit que pour une valeur donnée de δ , le champ est d'autant plus distordu (surtout près des électrodes) que $\omega\tau$ est petit.

Les relations suivantes donnent $\varphi(x)$, $\varepsilon(x)$ et $v(x)$:

$$\varphi(x) = - \frac{i\omega\tau X \cosh Y + \sinh X}{i\omega\tau Y \cosh Y + \sinh Y} d\varepsilon_a \quad (52)$$

$$\varepsilon(x) = \frac{i\omega\tau Y \cosh Y + Y \cosh X}{i\omega\tau Y \cosh Y + \sinh Y} \varepsilon_a \quad (51)$$

$$v(x) = \frac{\sinh X}{i\omega\tau Y \cosh Y + \sinh Y} \frac{\varepsilon Y^2}{ed} \varepsilon_a \quad (34')$$

où $X = (x/L) Z$.

Il résulte des formules précédentes que $\varphi(x)$ et $v(x)$

$$\varphi(x) + \frac{ed^2}{\varepsilon Y^2} v(x) = - \frac{i\omega\tau}{i\omega\tau + \operatorname{tgh} Y/Y} x\varepsilon_a \quad (53)$$

A basse fréquence ($\omega\tau \ll 1$), le membre de droite de (53) est très petit, de sorte que :

$$\varphi(x) \simeq - \frac{ed^2}{\varepsilon Y^2} v(x) \quad (54)$$

A haute fréquence ($\omega\tau \gg 1$), il devient comparable à $-x\varepsilon_a$, donc à $\varphi(x)$, et comme le champ à l'intérieur de l'échantillon est très peu distordu à haute fréquence (cf. Fig. 4), on peut poser :

$$-x\varepsilon_a = (1 - \eta) \varphi(x)$$

avec $\eta \ll 1$.

On en déduit que :

$$\varphi(x) \simeq - \frac{ed^2}{\eta\varepsilon Y^2} v(x) \quad (54')$$

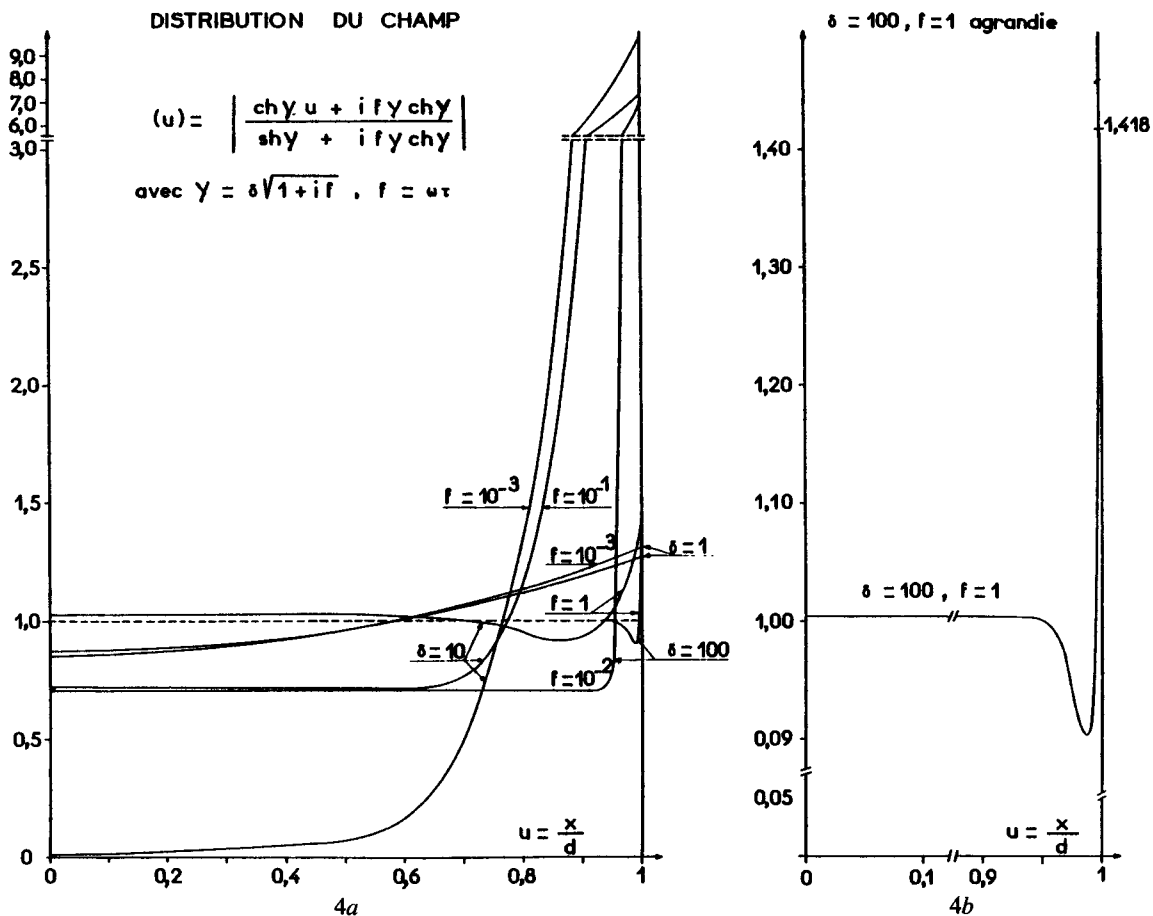


Fig. 4. — Distributions du module du champ réduit $F = \varepsilon/\varepsilon_a$ dans l'épaisseur réduite ($u = x/d$), pour diverses valeurs de $\omega\tau$ et de δ . L'échelle des u est dilatée dans la figure 4b.

[Distributions of the magnitude of the reduced field $F = \varepsilon/\varepsilon_a$ in the reduced thickness ($u = x/d$), for various values of $\omega\tau$ and of δ . The u scale is expanded in figure 4b.]

Les relations (54) et (54') démontrent que, excepté peut-être au voisinage immédiat des électrodes, φ est proportionnel à v quelle que soit la fréquence. Ceci justifie l'hypothèse introduite intuitivement par Truc-khan [6] pour traiter le cas de la charge d'espace dans des particules semiconductrices sphériques dispersées dans une matrice isolante.

Cas où les électrodes sont partiellement bloquantes. — Si les électrodes sont partiellement bloquantes, on peut admettre que le courant à $x = d$ (et, par symétrie, à $x = -d$) est proportionnel à la densité locale de charge à l'interface :

$$j(d) = \gamma D \frac{v(Y)}{d} = \gamma D \frac{Z}{L} \frac{v(Y)}{Y} \quad (55)$$

où γ est un coefficient sans dimension caractérisant la transparence de l'électrode [5] ($\gamma = 0$ pour une électrode bloquante). L'équation (31) devient alors :

$$n\mu\epsilon(Y) - D \frac{Z}{L} \left(\frac{dv}{dX} \right)_Y = \gamma D \frac{Z}{L} \frac{v(Y)}{Y}. \quad (56)$$

En utilisant (27) et (30), et en remplaçant dans ces relations v_1 par v' , (56) devient :

$$\begin{aligned} \epsilon_a + \frac{edv'}{\epsilon Y} \left(\cosh Y - \frac{\sinh Y}{Y} \right) = \\ = \frac{DZv'}{n\mu L} \left(\cosh Y + \gamma \frac{\sinh Y}{Y} \right) \end{aligned}$$

soit :

$$\epsilon_a = \frac{eLv'}{\epsilon Z} \left[i\omega\tau \cosh Y + (\gamma Z^2 + 1) \frac{\sinh Y}{Y} \right]. \quad (57)$$

On en tire le coefficient v' , d'où $v(x) = v' \sinh x$:

$$v'(x) = \frac{\epsilon Z \epsilon_a}{eL} \frac{\sinh X}{i\omega\tau \cosh Y + (\gamma Z^2 + 1) \sinh Y/Y}. \quad (58)$$

Ayant $v(x)$, on obtient $P(\omega)$ comme plus haut, et :

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon \frac{(1 + i\omega\tau)(1 + \gamma \operatorname{tgh} Y/Y)}{i\omega\tau + [(1 + i\omega\tau)\gamma + 1] \operatorname{tgh} Y/Y} \quad (59)$$

de sorte que la permittivité complexe réduite devient :

$$y^* = \frac{(\gamma + 1) \operatorname{tgh} \delta/\delta}{1 - \operatorname{tgh} \delta/\delta} \times \frac{1 - \operatorname{tgh} Y/Y}{i\omega\tau + [(1 + i\omega\tau)\gamma + 1] \operatorname{tgh} Y/Y} \quad (60)$$

La figure 5 représente l'effet du facteur de transparence γ sur le diagramme de permittivité complexe réduite. On voit que le diagramme s'inscrit à l'intérieur du demi-cercle de Cole et Cole, et qu'il est particulièrement aplati, pour les fortes valeurs de γ , dans la zone des hautes fréquences.

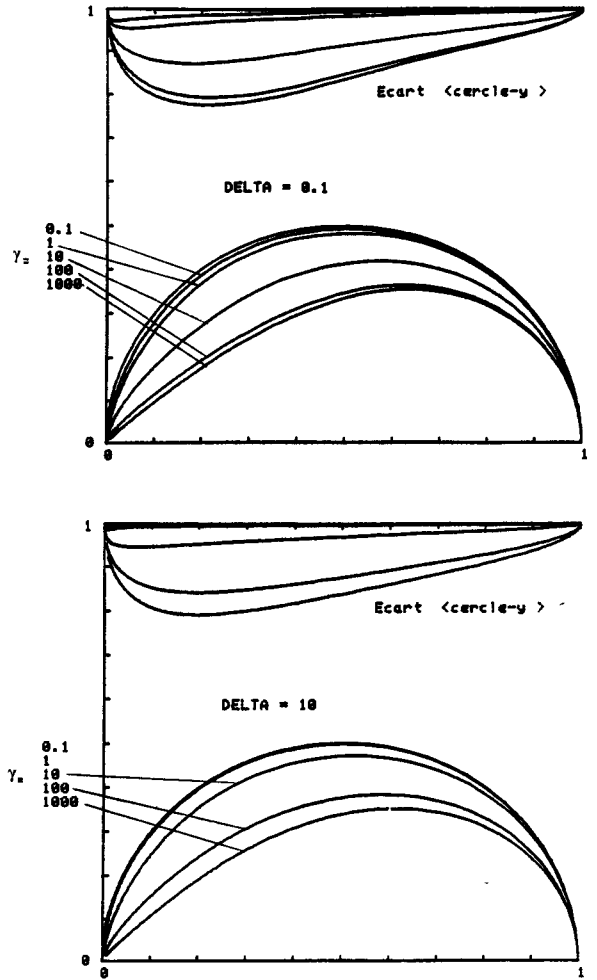


Fig. 5. — Mêmes diagrammes qu'à la figure 2, mais pour différents facteurs de transparence γ .

[Same diagrams as in figure 2, but for various values of the transparency factor γ .]

Le temps de relaxation, donné par la relation (47) pour $\gamma = 0$, est maintenant diminué de la quantité :

$$\Delta\tau' = \frac{\gamma}{\gamma + 1} (\delta \operatorname{cotgh} \delta - 1) \tau. \quad (61)$$

Par analogie avec le formalisme de Davidson et Cole, la permittivité complexe réduite peut être mise sous la forme $(1 + i\omega\tau')^{-\alpha}$ en posant :

$$\alpha = 1 - \frac{\gamma}{\gamma + 1} (\delta \operatorname{cotgh} \delta - 1). \quad (62)$$

La figure 6 représente la variation du temps de relaxation effectif $\tau'_e = \tau' - \Delta\tau'$ pour différentes valeurs du facteur de transparence γ .

6. Conséquences expérimentales. — La théorie développée ci-dessus est générale, et elle devient d'une grande simplicité analytique dans les deux cas extrêmes $\delta \ll 1$ (conducteurs extrinsèques avec une faible concentration de porteurs relativement mobiles),

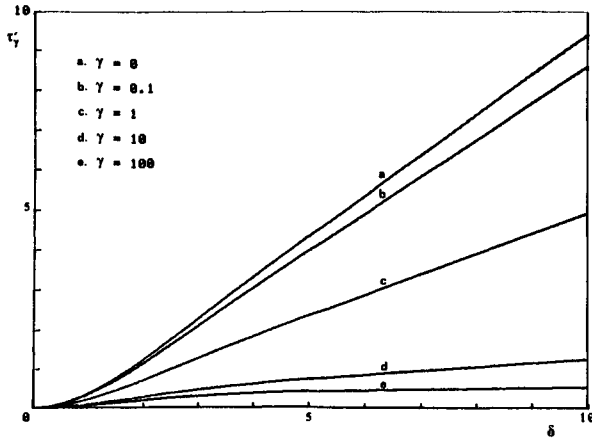


Fig. 6. — Variations du temps de relaxation effectif $\tau' - \Delta\tau'$ en fonction de δ , pour différentes valeurs du facteur de transparence γ . τ' est donné par la relation (47) et $\Delta\tau'$ par la relation (61).

[Variations of the effective relaxation time $\tau' - \Delta\tau'$ as a function of δ , for various values of the transparency factor γ . τ' is given by (47) and $\Delta\tau'$ by (61).]

et $\delta \gg 1$ (conducteurs intrinsèques avec une concentration élevée de porteurs très peu mobiles).

Nous proposons ci-dessous une vérification expérimentale simple basée sur une technique de polarisation dynamique différente de — et plus simple que — la méthode classique de dépolarisation stimulée thermiquement (DST), et dont le protocole expérimental serait le suivant :

a) polariser un échantillon mince fixé entre électrodes bloquantes (graphite par ex.) pendant une durée fixe T à différentes températures θ_i ($i = 1, 2, 3, \dots =$ numéro de la manipulation);

b) refroidir l'échantillon sous tension à une température θ_f à laquelle les porteurs sont immobiles;

c) connecter l'échantillon à un intégrateur de courant, le réchauffer à θ_p , et mesurer la charge $Q_i = \int i dt$ s'écoulant pendant une durée T_d ;

d) en extrapolant le graphe de Q_i en fonction de θ_p , estimer la charge Q_s de saturation.

La charge Q_s est liée à la permittivité statique ϵ_s , à l'aire sous champ A et au champ appliqué $E = V/2d$ par la relation

$$Q_s = (\epsilon_s - \epsilon) AE.$$

Or, la théorie développée ci-dessus donne, dans les cas limites précités, des expressions très simples pour $(\epsilon_s - \epsilon)$; par exemple, si $\delta \gg 1$, $\epsilon_s - \epsilon = \epsilon\delta = \epsilon d/L$. En utilisant cette relation dans l'expression de Q_s , on obtient dans ce cas particulier

$$Q_s = \epsilon AV/2L. \tag{63}$$

Ayant déduit Q_s des résultats expérimentaux, on

peut comparer la valeur de la longueur L de Debye tirée de (63) à celle qui résulte de sa définition.

Par ailleurs, en faisant varier la durée de polarisation à θ_i donné, on peut obtenir le temps de relaxation de la charge d'espace, et disposer ainsi d'une estimation de la mobilité μ , qu'on pourra comparer aux valeurs obtenues par d'autres méthodes, par exemple en opérant non plus entre électrodes bloquantes, mais au contraire en régime d'injection saturée.

7. Conclusions. — Il existe des analogies formelles remarquables entre la polarisation par charge d'espace et la polarisation par orientation dipolaire.

Non seulement la permittivité statique due aux charges d'espace dans une matrice de permittivité ϵ

$$\epsilon_s - \epsilon = \epsilon(\delta \operatorname{coth} \delta - 1) = \epsilon\delta\mathcal{L}(\delta) \tag{64}$$

fait intervenir la même fonction \mathcal{L} de Langevin que la permittivité due aux dipôles moléculaires, mais le cas usuel $\delta \ll 1$ conduit à la relation :

$$\epsilon_s - \epsilon \simeq \epsilon\delta^2/3 = \epsilon d^2/3 D\tau = \frac{ne^2 d^2}{3kT}, \tag{65}$$

qui se déduit de l'approximation linéaire de Langevin :

$$\epsilon_s - \epsilon_\infty = \frac{np^2}{3kT}, \tag{13}$$

en remplaçant le dipôle moléculaire p par le dipôle macroscopique (ed). Il n'est pas sans intérêt de constater ici l'analogie entre le problème microscopique tridimensionnel (théorie de Langevin) et le problème macroscopique unidimensionnel.

Cette analogie peut même être poussée plus loin. En effet, l'aplatissement asymétrique du diagramme de permittivité complexe introduit par la transparence des électrodes rappelle celui du « skewed arc diagram » de Davidson et Cole, si bien qu'il est peut-être difficile d'identifier l'espèce relaxante qui produit un spectre de permittivité complexe. Cette difficulté, déjà présente mais précisée ici, s'ajoute d'ailleurs à celles soulevées antérieurement [8].

Lorsqu'on a affaire à un matériau homogène, le temps de relaxation observé expérimentalement permet en principe de trancher si ce sont des dipôles moléculaires ou des charges d'espace qui relaxent. Toutefois, le choix est beaucoup plus délicat si on étudie une dispersion, dans une matrice, de petites particules (cas étudié par Truckhan), dans l'hypothèse où ces particules pourraient posséder des dipôles permanents. C'est, par exemple, le cas de dispersions de poudres obtenues à partir de matériaux ferroélectriques ou, éventuellement, de polymères contenant des agrégats polaires.

Remerciements. — L'auteur est reconnaissant à M. R. Hahn pour la réalisation des graphes sur ordinateur et à MM. R. Meaudre et F. Micheron pour leurs remarques constructives.

Bibliographie

- [1] DAVIDSON, D. W. and COLE, R. H., *J. Chem. Phys.* **18** (1971) 1417.
- [2] ROSS MACDONALD, J., *Phys. Rev.* **92** (1953) 4.
- [3] MEAUDRE, R. et MESNARD, G., *Rev. Phys. Appl.* **3** (1968) 247.
- [4] MEAUDRE, R. et MEAUDRE, M., *Phys. Status Solidi (a)* **37** (1976) 633.
- [5] BEAUMONT, J. H. and JACOBS, P. W. M., *J. Phys. Chem. Solids* **28** (1966) 657.
- [6] TRUCKHAN, E. M., *Sov. Phys. Solid State* **4** (1963) 2560.
- [7] COELHO, R., *Physics of Dielectrics for the Engineer* (Elsevier) 1979, p. 97-104.
- [8] JONSCHER, A. K., *Nature* **267** (1977) 673.
-